

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

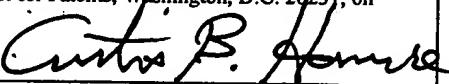
S/N 09/577080

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Uenishi, et al. Examiner: Unknown
Serial No.: 09/577080 Group Art Unit: 3747
Filed: May 23, 2000 Docket No.: 10921.88US01
Title: CATALYTIC CONVERTER FOR CLEANING EXHAUST GAS

CERTIFICATE UNDER 37 CFR 1.8: The undersigned hereby certifies that this Transmittal Letter and the paper, as described herein, are being deposited in the United States Postal Service, as first class mail, with sufficient postage, in an envelope addressed to: MISSING PARTS Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C. 20231, on August 15, 2000.

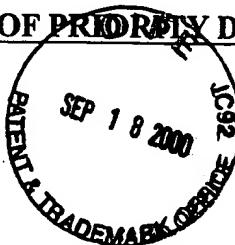
By: 
Curtis B. Hamre

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT(S)

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

RECEIVED
DEC 12 2000

Dear Sir:



TC 1700

Applicants enclose herewith certified copies of JAPANESE applications, Serial No. 11-143624, filed May 24, 1999, and Serial No. 2000-128799, filed April 28, 2000, the right of priority of which is claimed under 35 U.S.C. § 119.

Respectfully submitted,

MERCHANT & GOULD P.C.
P.O. Box 2903
Minneapolis, Minnesota 55402-0903
(612) 332-5300

By 
Curtis B. Hamre

Reg. No. 29,165

Dated: August 15, 2000

CBH/rw

RECEIVED
NOV 14 2000
TC 3700 MAIL ROOM



日本特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
る事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

出願年月日
Date of Application:

1999年 5月24日

願番号
Application Number:

平成11年特許願第143624号

願人
Applicant (s):

ダイハツ工業株式会社

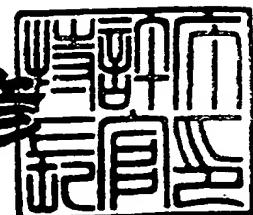
RECEIVED
DEC 12 2000
TC 1700

RECEIVED
NOV 14 2000
TC 3700 MAIL ROOM

2000年 6月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤 隆彦



出証番号 出証特2000-3041863



【書類名】 特許願
 【整理番号】 P11-138524
 【提出日】 平成11年 5月24日
 【あて先】 特許庁長官殿
 【国際特許分類】 B01J 23/00
 B01D 53/36
 【発明の名称】 排ガス浄化用触媒
 【請求項の数】 4
 【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハツ工業株式会
 社内
 【氏名】 上西 真里
 【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハツ工業株式会
 社内
 【氏名】 丹 功
 【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハツ工業株式会
 社内
 【氏名】 田中 裕久
 【特許出願人】
 【識別番号】 000002967
 【住所又は居所】 大阪府池田市ダイハツ町1番1号
 【氏名又は名称】 ダイハツ工業株式会社
 【代理人】
 【識別番号】 100086380
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 吉田 稔

RECEIVED
 DEC 12 2000
 TC 1700

【選任した代理人】

【識別番号】 100103078

【弁理士】

【氏名又は名称】 田中 達也

【連絡先】 06-6764-6664

【選任した代理人】

【識別番号】 100105832

【弁理士】

【氏名又は名称】 福元 義和

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 024198

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9503494

【ブルーフの要否】 要



【書類名】明細書

【発明の名称】 排ガス浄化用触媒

【特許請求の範囲】

【請求項1】 パラジウムが担持されたアルミナを含む第1被覆層が耐熱性支持担体上に形成されるとともに、プラチナおよびロジウムが共存担持されたセリウム系複合酸化物とプラチナおよびロジウムが共存担持されたジルコニウム系複合酸化物を含む第2被覆層が上記第1被覆層上に形成されてなることを特徴とする、排ガス浄化用触媒。

【請求項2】 上記第1被覆層内には、無機酸のバリウム塩が含有されている、請求項1に記載の排ガス浄化用触媒。

【請求項3】 上記第2被覆層の表層部にさらに、プラチナおよび／またはロジウムが担持されている請求項1または2に記載の排ガス浄化用触媒。

【請求項4】 上記セリウム系複合酸化物は、一般式、

【化1】



で表され、Mはイットリウム、ランタン、マグネシウムまたはカルシウムであり、ZはMの酸化数および原子割合によって決まる酸素欠損量を表し、 $0.4 \leq x + y \leq 0.7$ 、 $0.4 \leq x \leq 0.7$ 、 $0 \leq y \leq 0.2$ である、請求項1ないし3のいずれか1項に記載の排ガス浄化用触媒。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本願発明は、自動車などの内燃機関から排出される排ガス中に含まれる窒素酸化物 (NO_x)、一酸化炭素 (CO)、および炭化水素 (HC)などを効率良く浄化するための排ガス浄化用触媒に関する。

【0002】

【従来の技術】

排ガス中に含まれる NO_x 、CO、HCなどの有害物質を浄化するために従来

から最も広く用いられている触媒としては、プラチナ、パラジウム、ロジウムなどの貴金属を活性物質とした、いわゆる三元触媒がある。この三元触媒は、 NO_X から N_2 への還元反応、あるいは CO から CO_2 および HC から CO_2 、 H_2 への酸化反応の触媒として作用するものである。すなわち、上記三元触媒は、酸化反応および還元反応の両反応の触媒として作用することができ、排気ガス中に含まれる NO_X 、 CO 、 HC などの有害物質を浄化できるのである。

【0003】

そのため、上記三元触媒の活性の向上を図るべく様々な研究がなされており、たとえば酸化セリウム (CeO_2) が有する気相中の酸素を吸収または放出する機能、いわゆる酸素ストレージ能 (OSC) に着目したものがある。すなわち、上記酸化セリウムを三元触媒中に添加することにより気相雰囲気中の酸素濃度を調整するとともに、調整された気相雰囲気中における上記三元触媒による NO_X の還元反応、ならびに CO および HC の酸化反応の効率の向上を図ろうとするものである。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

ところで、自動車用触媒は、今後厳しさを増すコールドエミッションへの対応として床下から、より内燃機関に近いマニバータ位置に搭載される傾向にある。そのため、上記三元触媒は、実用的には、例えば900°C以上（場合によっては1000°C以上）の高温に曝されることもあり、このような高温下における高い耐久性が要求される。その一方で、内燃機関が始動した直後のように、上記内燃機関が十分に暖機されていない比較的の低温下においても、高い触媒活性が要求される。

【0005】

本願発明は、上記した事情のもとで考え出されたものであって、高温条件下に長時間曝された後においても、高い触媒活性を維持するとともに、比較的低温下においても有効に作用することができる排ガス浄化触媒を提供することをその課題とする。

【0006】

【発明の開示】

上記の課題を解決するため、本願発明では、次の技術的手段を講じている。

【0007】

すなわち、本願発明によれば、パラジウムが担持されたアルミナを含む第1被覆層が耐熱性支持担体上に形成されるとともに、プラチナおよびロジウムが共存担持されたセリウム系複合酸化物とプラチナおよびロジウムが共存担持されたジルコニウム系複合酸化物を含む第2被覆層が上記第1被覆層上に形成されることを特徴とする、排ガス浄化用触媒が提供される。

【0008】

なお、ロジウムおよびプラチナを同一担体上に共存させるとともに、パラジウムとは別の担体に担持させるのは、プラチナとロジウムとは相性が良いために、これらを同一の担体上に共存させることができ、一方、ロジウムとパラジウムとは、高温では合金となり各々の特性を損なうために触媒としては相性が悪く、これらを同一の担体上に共存させることができないからである。

【0009】

上記排ガス浄化用触媒においては、低温活性に優れるパラジウム (Pd) がアルミナに担持されて第1被覆層に含まれているので、低温排ガス、特にHCを良好に浄化することができる。すなわち、パラジウムを含むことによって内燃機関が十分に暖機されていない段階においても、HCなどを含む排ガスを十分に浄化することができる。

【0010】

上記第1被覆層においては、パラジウムが担持されたアルミナを、たとえば多数のセルが形成されたハニカム状の耐熱性支持担体の上に被覆する。アルミナの担持量は耐熱性支持担体 1 dm^3 (見掛け体積) 当たり $30 \sim 70 \text{ g}$ (以後 g/dm^3 -cat と示す) が好適である。また、パラジウムが担持されたアルミナとともにパラジウムの活性を阻害しない範囲でセリウム系複合酸化物が担持されてもよい。その量は、通常、 $0 \sim 45 \text{ g/dm}^3$ -cat が好適である。

【0011】

また、第2被覆層にプラチナ (Pt) およびロジウム (Rh) が共存担持され

たセリウム系複合酸化物とプラチナおよびロジウムが共存担持されたジルコニウム系複合酸化物を含ませるのは、高温における触媒活性を高めるためである。

【0012】

また、第2被覆層におけるセリウム系複合酸化物の担持量は、60～100g/dm³-catが好適である。また、ジルコニウム系複合酸化物の担持量は、40～70g/dm³-catが好適である。さらに、アルミナ等の耐熱性無機酸化物を添加する。その量は通常、30～60g/dm³-catである。

【0013】

また、内燃機関が始動した直後のように低温の排ガス中のHC等、有害物質の浄化能を高めるには、上記第2被覆層の表層にPtおよび/またはRhを担持させると、さらに好ましい結果が得られる。第2被覆層の表層にPtおよび/またはRhを担持させる方法は、通常、耐熱性支持担体の上に第1被覆層、第2被覆層を形成して得られた触媒をプラチナおよび/またはロジウムの塩を含む溶液中に浸漬し、所定の量を含浸させた後に熱処理すればよい。

【0014】

このように耐熱性支持担体上に複数の被覆層、通常第1被覆層と第2被覆層を分離して形成するとともにパラジウムを含む層を内側に形成すれば、第2被覆層よりも内側の第1被覆層にパラジウムが存在することとなるため、パラジウムの活性を低下させる排ガス中の被毒成分の影響を低減させることができる。また、上記第2被覆層の表層にPtおよび/またはRhを担持させると、低温での排ガス中のHC等の浄化能をさらに高めることができる。

【0015】

上記ロジウムおよびプラチナの担体として用いられるセリウム系複合酸化物としては、酸化セリウムと酸化ジルコニウムとを含むセリウム系複合酸化物、あるいはこの複合酸化物に少量の希土類元素やアルカリ土類金属元素などが添加されたものなどが挙げられる。すなわち、上記セリウム系複合酸化物としては、一般式、Ce_{1-(x+y)}Zr_xM_yO_{2-z} (M: Y, La, MgあるいはCa) で表されるものが好適に使用される。ここで、ZはMの酸化数および原子割合によって決まる酸素欠損量を表し、0.4≤x+y≤0.7、0.4≤x≤0.7、0≤

≤0.2とされる。なお、酸化セリウムと酸化ジルコニウムとを含むセリウム系複合酸化物においては、酸化セリウム結晶中のセリウム元素の一部がジルコニウム元素で置換固溶されていることが好ましい。セリウム元素の一部をジルコニウム元素で置換固溶させれば、酸化セリウムの粒成長が抑制されて耐熱性が向上するからである。

【0016】

さらに、上記第1被覆層内に硫酸バリウム、硝酸バリウム等の無機酸のバリウム塩、好ましくは硫酸バリウムを添加すれば、2層分離してその内層にパラジウムを含ませることによる効果に加えて、バリウム塩を添加することによる効果によって、パラジウムの活性低下をより有効に抑制することができる。

【0017】

また、第2被覆層において、ロジウム (Rh) およびプラチナ (Pt) の担体としてジルコニウム系複合酸化物を用いるが、この場合、ジルコニウム系複合酸化物としては、酸化ジルコニウムと酸化セリウムとを含むジルコニウム系複合酸化物、あるいはこの複合酸化物に少量の希土類元素やアルカリ土類金属元素などが添加されたものなどが挙げられる。

【0018】

本発明においては、第1被覆層に用いられるパラジウムが担持されたアルミナは、所望によりセリウム系複合酸化物とともに混合され、耐熱性支持担体の上に被覆される。耐熱性支持担体としては、コーデュライト、ムライト、 α -アルミナ、金属（たとえばステンレス鋼）などからなり、多数のセルが形成されたハニカム担体を用いることができる。このハニカム担体を用いる場合には、各セルの内表面は上記、パラジウムが担持されたアルミナを所望によりセリウム系複合酸化物の混合物とした上で被覆（公知のウォッシュコート）され、第1被覆層が形成される。

【0019】

また第2被覆層に用いられるロジウム (Rh) およびプラチナ (Pt) を共存担持したセリウム系複合酸化物とロジウム (Rh) およびプラチナ (Pt) を共存担持したジルコニウム系複合酸化物はアルミナ等の耐熱性無機酸化物と混合さ